

УДК 535.14+535.341.08

БИФОТОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ КРИСТАЛЛА РУБИНА

*А.А. Калачёв, Д.А. Калашников, А.А. Калинин,
Т.Г. Митрофанова, В.В. Самарцев, А.В. Шкаликов*

Аннотация

Измерен спектр поглощения ионов Cr^{3+} в кристалле Al_2O_3 (в области 691–697 нм) с использованием бифотонного света, генерируемого в процессе невырожденного спонтанного параметрического рассеяния излучения гелий-кадмиевого лазера (325 нм) в кристалле йодата лития.

Ключевые слова: бифотон, спектроскопия, спонтанное параметрическое рассеяние, спектр поглощения.

Введение

Бифотонная спектроскопия – раздел спектроскопии, изучающий спектры поглощения с помощью коррелированных пар фотонов (или бифотонов [1]), рождающихся в процессе спонтанного параметрического рассеяния (СПР) света в нелинейном кристалле. Отличительными особенностями СПР являются широкий непрерывный спектр, не связанный непосредственно с собственными частотами вещества, и двухфотонный характер излучения, что и позволяет использовать бифотоны для проведения спектроскопических исследований [2–4]. Бифотонная спектроскопия обладает целым рядом достоинств и позволяет, например, избежать непосредственного измерения длины волны в неудобных спектральных областях, а именно в ультрафиолетовой (достаточно измерить длину волны лишь у одного из коррелированных фотонов, которая может принадлежать видимой области спектра), а также увеличить отношение сигнал/шум при измерении в инфракрасной области (измеряется скорость совпадений, а не интенсивность проходящего сигнала). В настоящей работе представлены результаты измерений спектра поглощения кристалла $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$. По сравнению с работами [2, 3] достигнуто значительно более высокое спектральное разрешение (порядка 0.01 нм). Кроме того, в отличие от этих работ и нашей предыдущей работы [4], в настоящем эксперименте впервые использовался сильно невырожденный режим СПР, когда разность частот коррелированных фотонов существенно превосходит их спектральную ширину. Данный режим позволяет исследовать спектр поглощения, измеряя длину волны в сильно отличающемся от него диапазоне.

1. Теория

В процессе СПР плоская волна накачки с частотой ω_p возбуждает квадратично нелинейный кристалл, в котором случайным образом (с эффективностью порядка 10^{-7} – 10^{-11}) происходит уничтожение высокочастотного фотона накачки и одновременное рождение двух низкочастотных фотонов, называемых обычно холостым и сигнальным. В зависимости от поляризации сигнального и холостого

фотонов, формирующих бифотон, различают СПР типа I, когда фотоны в паре поляризованы одинаково (и линейно), и СПР типа II, когда поляризации фотонов в паре являются ортогональными. При определенной ориентации оптической оси кристалла пара фотонов может испускаться коллинеарно, в том же направлении, что и излучение накачки. В случае непрерывной накачки и невырожденного коллинеарного режима СПР состояние бифотонного поля можно записать в виде [5]:

$$|\Psi\rangle = |0\rangle + \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega F(\Omega) a_s^\dagger(\omega_{s0} + \Omega) a_i^\dagger(\omega_{i0} - \Omega) |0\rangle, \quad (1)$$

где $|0\rangle$ – вакуумное состояние поля, $a_s^\dagger(\Omega)$ и $a_i^\dagger(\Omega)$ – операторы рождения сигнальных и холостых фотонов соответственно, ω_{s0} , ω_{i0} – частоты точного синхронизма для сигнальной и холостой волн ($\omega_{s0} + \omega_{i0} = \omega_p$). Функция $F(\Omega)$, называемая спектральной амплитудой бифотона, определяет спектральную ширину бифотонного поля и зависит от свойств нелинейного кристалла и типа синхронизма. Выражение (1) ясно показывает, что бифотонное поле обладает свойством частотной антикорреляции, которое и является основой бифотонной спектроскопии. Сигнальный фотон проходит через образец, спектр поглощения которого измеряется, и попадает на один детектор. Холостой фотон проходит через монохроматор и попадает на другой детектор. Спектр поглощения определяется по зависимости скорости счета совпадений от длины волны пропускания монохроматора.

Скорость совпадений фотоотсчетов R_c на двух детекторах 1 и 2 пропорциональна следующей величине [6]:

$$\int_0^T dt_1 \int_0^T dt_2 |\langle 0 | E_1^+(t_1) E_2^+(t_2) | \Psi \rangle|^2, \quad (2)$$

где T – временное окно схемы совпадений, а положительно- и отрицательно-частотные полевые операторы в точке, где расположен j -й детектор, имеют вид:

$$E_j^+(t_j) = \int d\omega_j^+ a_j(\omega_j^+) e^{-i\omega_j^+ t_j}, \quad E_j^-(t_j) = \int d\omega_j^- a_j^\dagger(\omega_j^-) e^{+i\omega_j^- t_j}.$$

Поскольку величина T обычно намного больше обратной ширины спектра измеряемого поля, интегралы в формуле (2) приводят к дельта-функциям по $\omega^+ - \omega^-$ [7], так что

$$R_c \propto \int d\omega_1 \int d\omega_2 |\langle 0 | a_1(\omega_1) a_2(\omega_2) | \Psi \rangle|^2.$$

Обозначим через $H_S(\omega)$ и $H_M(\omega)$ частотные характеристики образца и монохроматора соответственно. Тогда $a_1(\omega_1) = \frac{1}{\sqrt{2}} a_s(\omega_1) H_S(\omega_1)$ и $a_2(\omega_2) = \frac{i}{\sqrt{2}} a_i(\omega_2) H_M(\omega_2)$ при условии, что сигнальные и холостые фотоны разделяются светоделителем 50/50. В результате имеем, что

$$R_c \propto \int d\Omega |H_S(\omega_{s0} + \Omega) H_M(\omega_{i0} - \Omega) F(\Omega)|^2. \quad (3)$$

Теперь предположим, что $H_M(\omega)$ является дельта-образной функцией по сравнению с $H_S(\omega)$ и $F(\omega)$, то есть $H_M(\omega) = \delta(\omega - \omega_M)$, где частота ω_M не выходит за пределы частотной области, в которой функция $F(\omega)$ существенно отлична от

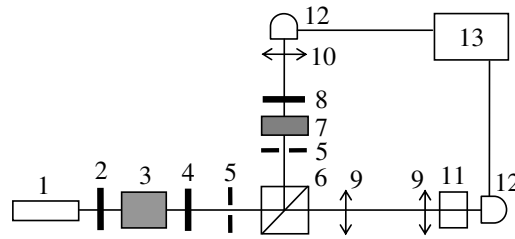


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки: 1 – He–Cd лазер, 2 – УФ-фильтр, 3 – кристалл йодата лития, 4 – жёлтый светофильтр, 5 – диафрагма, 6 – светоделитель, 7 – образец, 8 – интерференционный фильтр, 9, 10 – линзы, 11 – монохроматор, 12 – детектор, 13 – схема совпадений

нуля. Разделив скорость счета совпадений с образцом $R_{c,обр}$ на скорость счета совпадений без образца R_c , получим из (3) искомый спектр поглощения

$$\frac{R_{c,обр}}{R_c} \propto |H_S(\omega_p - \omega_M)|^2. \quad (4)$$

Необходимо отметить, что спектральная ширина СПР, то есть ширина функции $F(\omega)$, определяет спектральный диапазон измерения при заданной ориентации кристалла. Функция $F(\omega)$ не обязательно должна быть плоской в этом диапазоне, однако, если она плоская, то необходимость в указанном делении скоростей отпадает.

Таким образом, скорость совпадений фотоотсчетов воспроизводит спектр поглощения образца (в обращённом виде относительно частоты накачки) при условии, что спектральная ширина излучения накачки и полоса пропускания монохроматора достаточно узкие для того, чтобы разрешить детали спектра (форму или особенности линии поглощения). Для увеличения диапазона измерения предпочтительнее использовать короткие нелинейные кристаллы.

2. Эксперимент

Блок-схема экспериментальной установки, основу которой составляет интерферометр Брауна–Твисса, представлена на рис. 1. Бифотоны генерировались в процессе СПР в кристалле йодата лития толщиной 10 мм (LiIO_3), вырезанного для коллинеарного режима типа I. В качестве накачки использовался He–Cd лазер (10 мВт, 325 нм), работающий в непрерывном одномодовом режиме. Перед кристаллом ставился ультрафиолетовый фильтр, который отсекал генерируемые лазером фотоны, лежащие в красной области спектра. Жёлтый фильтр отсекал накачку после нелинейного кристалла и пропускал излучение СПР. Диафрагмы служили для выделения необходимой пространственной моды из всего пространственного спектра СПР, а также служили для уменьшения засветки. Линзы в канале с монохроматором фокусировали излучение СПР на щель монохроматора, а в сопряженном канале – на фотодетектор. Излучение СПР в обоих каналах интерферометра Брауна–Твисса регистрировалось лавинными фотодиодами (SPCM: Perkin Elmer AQR-14FC) с низким темновым шумом (порядка 100 имп/с). Импульсы в формате TTL с фотодетекторов поступали на дискриминатор-формирователь импульсов, преобразующий сигналы в стандарт NIM. Сигналы с дискриминатора-формирователя через электронную линию задержки поступали на схему совпадений с характерным временным окном разрешения порядка 3 нс. Все блоки были выполнены в

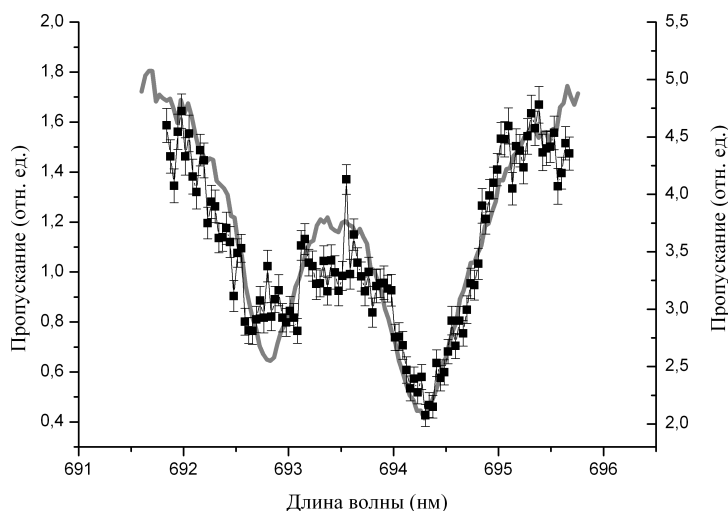


Рис. 2. Спектр поглощения ионов Cr^{3+} в кристалле Al_2O_3 в области 693 нм, полученный методами классической спектроскопии (сплошная линия, левая ось y) и бифотонной спектроскопии (■, правая ось y)

виде сопряжённой системы блоков стандарта КАМАК, которая управлялась персональным компьютером.

В качестве образца использовался примесный кристалл $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$ (концентрация ионов хрома 9%, толщина кристалла 3 мм). Спектр поглощения измерялся в области 694 нм, соответствующей известным резонансным линиям R_1 и R_2 . Поскольку ширина спектра СПР в невырожденном режиме около 2 нм, то есть на порядок меньше, чем в вырожденном, в ходе измерения спектра поглощения кристалл йодата лития поворачивался на различные углы, что позволило охватить диапазон длин волн 690–697 нм. На рис. 2 показан спектр поглощения ионов Cr^{3+} в кристалле Al_2O_3 , измеренный двумя способами: методом бифотонной спектроскопии, вычисленный по формуле (4), и методом обычной (однофотонной) спектроскопии с использованием источника классического света. Из рисунка видно, что имеется хорошее согласие результатов, полученных двумя способами, что говорит о достоверности метода бифотонной спектроскопии.

Заключение

Измерен спектр поглощения примесных ионов Cr^{3+} в кристалле Al_2O_3 с использованием бифотонного света, генерируемого в процессе невырожденного СПР-излучения гелий-кадмиевого лазера в кристалле йодата лития. Таким образом, впервые экспериментально показано, что в случае бифотонной спектроскопии диапазон длин волн, измеряемых монохроматором, может существенно отличаться от области длин волн, соответствующей спектру поглощения образца. Ранее авторами данной работы было продемонстрировано другое основное преимущество бифотонной спектроскопии по сравнению с однофотонной – возможность измерять линии поглощения в присутствии значительного внешнего шумового фона (или при наличии больших темновых токов у фотодетекторов) [4]. Данное преимущество играет роль в тех случаях, когда необходимо проводить измерения объектов, чувствительных к интенсивности поглощаемого света, особенно в инфракрасном диапазоне (биологические объекты, хрупкие кристаллы и др.), и позволяет существенно сни-

зитель время воздействия света на объект по мере достижения необходимой точности измерения.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проекты № 06-02-16169, 07-02-00883, 08-02-00032, 08-02-90001-Бел), Фондом содействия отечественной науке, программ Президиума РАН «Квантовая макрофизика» и ОФН РАН «Оптическая спектроскопия и стандарты частоты» и «Когерентные акустические поля и сигналы», а также гранта Президента РФ для поддержки ведущих научных школ РФ (НШ-2965.2008.2).

Summary

A.A. Kalachev, D.A. Kalashnikov, A.A. Kalinkin, T.G. Mitrofanova, V.V. Samartsev, A.V. Shkalikov. Biphoton Spectroscopy of Ruby.

The absorption spectrum of Cr^{3+} ions in Al_2O_3 in the range from 691 to 697 nm was measured using biphoton light generated by nondegenerate spontaneous parametric down-conversion of He-Cd laser radiation (325 nm) in LiIO_3 .

Key words: biphoton, spectroscopy, spontaneous parametric down-conversion, absorption spectrum.

Литература

1. *Клышко Д.Н.* Фотоны и нелинейная оптика. – М.: Наука, 1980. – 256 с.
2. *Yabushita A., Kobayashi T.* Spectroscopy by frequency-entangled photon pairs // *Phys. Rev. A.* – 2004. – V. 69. – P. 013806.
3. *Scarcelli G., Valencia A., Gompers S., Shih Y.* Remote spectral measurement using entangled photons // *Appl. Phys. Lett.* – 2003. – V. 83, No 26. – P. 5560–5562.
4. *Kalachev A.A., Kalashnikov D.A., Kalinkin A.A., Mitrofanova T.G., Shkalikov A.V., Samartsev V.V.* Biphoton spectroscopy of YAG:Er^{3+} crystal // *Laser Phys. Lett.* – 2007. – V. 4. – P. 722–725.
5. *Belinsky A.V., Klyshko D.N.* Two-Photon Wave Packets // *Laser Phys.* – 1994. – V. 4. – P. 663–689.
6. *Glauber R.J.* The Quantum Theory of Optical Coherence // *Phys. Rev.* – 1963. – V. 130. – P. 2529–2539.
7. *Steinberg A.M., Kwiat P.G., Chiao R.Y.* Dispersion cancellation and high-resolution time measurement in a fourth-order optical interferometer // *Phys. Rev. A.* – 1992. – V. 45. – P. 6659–6665.

Поступила в редакцию
07.04.08

Калачёв Алексей Алексеевич – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: kalachev@samartsev.com

Калашников Дмитрий Андреевич – аспирант Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: dimonk@hitv.ru

Калинкин Александр Александрович – кандидат физико-математических наук, научный сотрудник Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН

E-mail: *kalinkin@samartsev.com*

Митрофанова Татьяна Геннадьевна – научный сотрудник Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: *mitrofanova@kfti.knc.ru*

Самарцев Виталий Владимирович – доктор физико-математических наук, профессор, заведующий лабораторией нелинейной оптики Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: *samartsev@kfti.knc.ru*

Шкаликов Андрей Викторович – младший научный сотрудник Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: *shkalikov@mail.knc.ru*